

2023 年度
創発的研究支援事業 年次報告書

研究成果の概要

研究担当者	倉重佑輝
研究機関名	京都大学
所属部署名	大学院理学研究科
役職名	准教授
研究課題名	相対論的多配置理論による光化学スピントロニクスの開拓
研究実施期間	2023 年 4 月 1 日～2024 年 3 月 31 日
<p>光に誘起される電子スピン偏極や磁場応答発光特性など、光化学スピントロニクスの理論的な開拓の基礎となる電子のスピン座標に依存した相互作用を非経験的に算出する基礎理論の開発を行なった。異なるスピン多重度に属する電子状態間の相互作用は例えば電子のフェルミ粒子としての対称性から発現する交換相互作用など非相対論的な有効的な相互作用であるのに対し、同一スピン多重度の副準位間のエネルギー準位はスピン双極子相互作用やスピン軌道相互作用などピュアに相対論的な相互作用に基づく。特に後者の相対論的な相互作用を算出する手法について、非相対論的なエネルギー計算の標準的な手法である密度汎関数理論では一電子描像に基づく波動関数を採用するためスピン双極子相互作用の本来の二電子相互作用が欠落することに起因して信頼性を担保できないことが知られている。一方、多電子描像を用いる多配置理論に基づく手法を用いることで高い信頼性を担保した予測が可能であることが知られているが、色素 π 電子の数に対して指数関数オーダーに変数や計算量が増大するため比較的大きな π 共役分子系に対する適用が課題になっていた。そこで本研究では多電子描像に基づきながらも量子状態が内包する構造を上手く利用することで変数や計算量の増加が π 電子の数に対して多項式オーダーに圧倒的に低減することができる密度行列繰り込み群を用いた多配置理論を用いることで、ポルフィリンなど応用上重要と考えられるサイズの π 共役分子系におけるスピン双極子相互作用の算出する手法を開発し、また resolution of the identity 法により二電子相互作用であるスピン双極子相互作用の分子積分を高速に計算することで、実験値のある 16 種類の分子に対して実際にスピン副準位のエネルギー準位の精密な予測が可能であることを実証した。</p>	

